

RÉPUBLIQUE FRANÇAISE
INSTITUT NATIONAL
DE LA PROPRIÉTÉ INDUSTRIELLE

PARIS

DEMANDE
DE BREVET D'INVENTION

N° 78 31246

2 439 616

(11) N° de publication :
(A n'utiliser que pour les
commandes de reproduction).

(21)

(54) Autoclave de laboratoire à hautes performances.

(51) Classification internationale. (Int. Cl 3) B 01 J 3/04; H 05 B 3/10, 3/62.

27 octobre 1978, à 11 h 6 mn.

Priority revendiquée :

(22)
(31) (32) (33)

(41) Date de la mise à la disposition du
public de la demande.....

B.O.P.I. — «Listes» n. 21 du 23-5-1980.

(71) Déposant : E.N.S.C.S. (Ecole Nationale Supérieure de Chimie de Strasbourg) DEPARTE-
MENT SCIENCE DES MATERIAUX, résidant en France.

(72) Invention de : Madi Yassa Goundiam, Bernard Willier et Marc Daire.

(73) Titulaire : *Idem* (71)

(74) Mandataire : Cabinet Arbousse Bastide, 20, rue de Copenhague, 67000 Strasbourg.

La présente invention a pour objet un autoclave de laboratoire pour la compression isostatique à chaud en ambiance gazeuse.

La technique de compression isostatique à chaud en ambiance gazeuse, par exemple en atmosphère d'argon ou d'hélium, est utilisée pour la compaction, la densification, le frittage ou encore le chemisage de corps ou poudres métalliques de même composition ou de compositions différentes. Ces opérations nécessitent des unités permettant d'atteindre simultanément des pressions élevées (2 000 bars) et des températures élevées (1500°C).

On connaît déjà des autoclaves de ce type, constitués essentiellement par une enceinte cylindrique, munie de moyens adéquats de fermeture et d'étanchéité. Pour des températures de 1 450°C, on utilise généralement dans ces autoclaves un corps de chauffe en molybdène.

Ces autoclaves, tout en permettant des performances intéressantes, présentent toutefois plusieurs inconvénients. En premier lieu, ils sont d'un prix très élevé du fait de l'utilisation précisée de métaux comme le molybdène.

D'autre part, il faut prendre des précautions spéciales d'ouverture de l'appareil après usage, car si l'appareil est à température trop élevée, il y a dégradation du molybdène.

En pratique, il ne faut pas dépasser 200°C à l'air libre.

Enfin, le corps de chauffe en métal est soumis à une forte pression et une forte température qui ont pour conséquence de le rendre cassant après la première opération. Il y a donc fragilisation progressive de la pièce maîtresse de l'autoclave. La présente invention tend à remédier à ces inconvénients en proposant un autoclave comparativement peu onéreux, résistant à l'oxydation et ne se fragilisant pas avec l'usage.

Selon l'invention, ce résultat est atteint en proposant un autoclave permettant de travailler avec une sécurité maximum à une température de 1 500°C et une pression de 2 000 bars du type comportant un corps cylindrique en acier dans lequel sont logés un corps de chauffe, des moyens d'isolation thermique et électrique, des moyens de mesure et de température, ledit corps cylindrique étant muni de moyens pour assurer la fermeture et l'étanchéité de l'ensemble, caractérisé en ce que le corps de

chauffe est constitué par un cylindre creux en graphite au centre duquel est placée une nacelle portant l'objet ou le mélange à traiter.

De manière préférentielle, le cylindre de graphite constituant le corps de chauffe sera usiné superficiellement sur au moins une partie de sa longueur de manière à en limiter la résistance électrique. Cet usinage pourra par exemple consister en une hélice ou toute autre disposition équivalente, par exemple des rainures longitudinales.

Le cylindre constituant le corps de l'autoclave est fermé de manière connue en elle-même par un système d'obturateurs et de bouchons filetés. On peut d'ailleurs concevoir également, sans sortir du cadre de l'invention, d'utiliser un corps d'autoclave sur lequel on applique à chaque extrémité du cylindre un couvercle d'acier maintenu par une presse hydraulique. Un tel dispositif est connu en lui-même et ne sera pas décrit ici. Toutefois, l'utilisation de tels dispositifs est limitée car ils ne permettent pas d'atteindre une pression suffisamment élevée dans l'état actuel de la technique.

D'autre part, l'ensemble du corps de pression de l'autoclave est soumis à une circulation liquide extérieure assurant le refroidissement, par exemple une circulation d'eau et/ou d'huile.

Le choix des matériaux est dans la pratique d'une importance considérable. Ainsi, pour le corps de l'autoclave on utilisera de l'acier, de préférence un acier austénitique de même que pour les bouchons de fermeture. Les obturateurs seront constitués par un acier spécial de construction.

En ce qui concerne le corps de chauffe proprement dit, il se compose selon l'invention, d'un tube dont la partie centrale est usinée superficiellement de manière préférentielle pour obtenir une conformation hélicoïdale. La matière sera par exemple un graphite compressé de structure très fine de très grande pureté dont les propriétés pourront être les suivantes :

Charge de rupture de flexion : 600 daN/cm²
 Coefficient de dilatation à 100°C : $4.2 \cdot 10^{-6} \text{ } ^\circ\text{K}^{-1}$
 Conductivité thermique : $0.5 \text{ W.cm}^{-1}\text{ } ^\circ\text{K}^{-1}$
 Résistivité électrique : $1500 \cdot 10^{-8} \Omega\text{.cm}$

Cendres : < 0,1 % (10 ppm)

L'usage de l'élément chauffant permet de lui conférer une résistance électrique ne nécessitant pas l'utilisation de très fortes intensités de courant.

Pour optimiser les contacts électriques entre le graphite et les amenées de courant, l'élément chauffant sera argente à ses extrémités. On utilisera également des colliers de serrage en molybdène, métal qui présente un faible coefficient de dilatation, et les amenées de courant seront réalisées en fils de cuivre tressés.

Pour préserver au mieux les caractéristiques mécaniques de l'enceinte, limiter l'échauffement des passages de courant et des obturateurs en évitant d'avoir à utiliser de trop fortes intensités, il est nécessaire d'obtenir le gradient de température le plus élevé possible entre l'élément chauffant et la paroi interne de l'enceinte. Le transfert de chaleur par rayonnement, qui s'effectue à travers un milieu transparent ou à travers le vide, ne semble pas pouvoir prendre beaucoup d'importance dans un appareil de ce type, si l'on prévoit pour occuper l'espace entre les deux surfaces chaude et froide un nombre suffisant d'écrans isolants.

Dans un dispositif conforme à l'invention, on peut utiliser par exemple successivement du feutre de graphite, un tube de carbone vitreux, du feutre à base d'alumine, et un tube de pythagoras.

Le feutre à base d'alumine, utilisable jusque vers 1 300°C, assure également l'isolation électrique, tandis que le tube de pythagoras, qu'il est nécessaire de rectifier sur sa surface externe, sert à la fois d'écran final et d'élément de remplissage pour réduire l'espace restant entre le four proprement dit et la paroi de l'enveloppe.

Les caractéristiques techniques des isolants utilisés dans un autoclave conforme à l'invention peuvent être par exemple les suivantes :

1° - CARBONE VITREUX :

Température limite d'utilisation

Limite de rupture à la compression

Conductivité thermique

Résistivité électrique

: 2 500°C

: 1000 à 2000 kg/cm²

: 83.10⁻³ W.cm⁻¹.K⁻¹

: 4500 Hg.cm⁻¹

2° - FEUTRE DE GRAPHITE :

Conductivité thermique à 1000°C

(mesurée sous vide)

: $1,7 \cdot 10^{-3} \text{ W.cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$

Conductivité thermique à 1400°C

(mesurée sous vide)

: $2,6 \cdot 10^{-3} \text{ W.cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$

3° - PYTHAGORAS :

Température limite d'utilisation : 1600°C

Conductivité thermique de 20 à

100°C : $23 \cdot 10^{-3} \text{ W.cm}^{-1} \cdot \text{K}^{-1}$

(Le pythagoras est un silicate d'aluminium qui a une excellente résistance aux chocs thermiques.

Dans les autoclaves conformes à l'invention, les échantillons à traiter sont disposés dans une nacelle usinée dans le

même matériau, à savoir le graphite, que l'élément chauffant, pour éviter tout risque d'interaction. Dans les dites nacelles en graphite, l'échantillon sera entouré de nitrure pour éviter au

maximum toute interaction chimique entre l'échantillon et le graphite. Enfin les autoclaves selon l'invention sont reliés de manière connue en elle-même à une installation périphérique comportant :

- une alimentation électrique ;

- un compresseur ;

- un circuit de refroidissement ;

- des organes de sécurité.

Les autoclaves selon l'invention présentent les avantages suivants :

- fiabilité maximale ;

- faible prix de revient ;

- longue durée d'utilisation sans détérioration par fragilisation ou oxydation.

Ils constituent en pratique un outil de travail trouvant une application particulièrement intéressante dans les laboratoires de recherche.

On comprendra mieux l'invention à l'aide de la description

- tion ci-après et des dessins annexés dans lesquels :
- la figure 1 représente une vue d'ensemble en coupe partielle d'un autoclave conforme à l'invention ;
 - la figure 2 représente une vue du système porte-échantillon ;
 - la figure 3 représente une vue en coupe du passage du thermocouple à travers le bouchon et l'obturateur supérieur ;
 - la figure 4 représente un détail des filets de vis et d'écrou des bouchons de fermeture.
- 10 L'intérieur duquel sont disposés le corps de chauffe 2 et les éléments d'isolation thermique et électrique 3, un feutre de graphite (isolant thermique) 4, un feutre d'alumine (isolant thermique et électrique) 5 et du pythagoras (isolant) 6.
- 15 Le corps de chauffe 2 est maintenu à l'intérieur du corps de pression par des supports isolants 7.
- 20 Le corps de pression est muni à chacune de ses extrémités de bouchons 8 et 9 et d'obturateurs respectivement supérieur 10 et inférieur 11.
- 25 L'obturateur supérieur 10 est traversé par un tube haute pression 12 en acier tube au travers duquel est munir les bouchons d'extracteurs 13, 14 pour faciliter la sortie du bouchon lors du démontage.
- 30 L'obturateur inférieur 11 est traversé d'une part par l'alimentation électrique 15 et par le thermocouple 16 d'autre part. L'alimentation électrique 15 est reliée au corps de chauffe 2 par des colliers en molybdène 17, 18.
- 35 Les bouchons 8, 9 sont préférentiellement du type comportant un joint en cuivre 19 et un contre-joint en acier 20. Entre le bouchon supérieur 8 et le corps de chauffe est disposé un isolant thermique en graphite 21 tandis que, de la même manière, on prévoit entre le bouchon inférieur 9 et le corps de chauffe 12 un isolant thermique et électrique 22 constitué par exemple d'alumine.
- 40

Enfin, l'ensemble du corps de pression est entouré d'une chemise de refroidissement 23 dans laquelle on fait circuler un liquide, comme par exemple un mélange eau/huile de coupe.

Les échantillons à traiter sont disposés dans une nacelle 24 supportée par une porte-nacelle 25 munie d'un

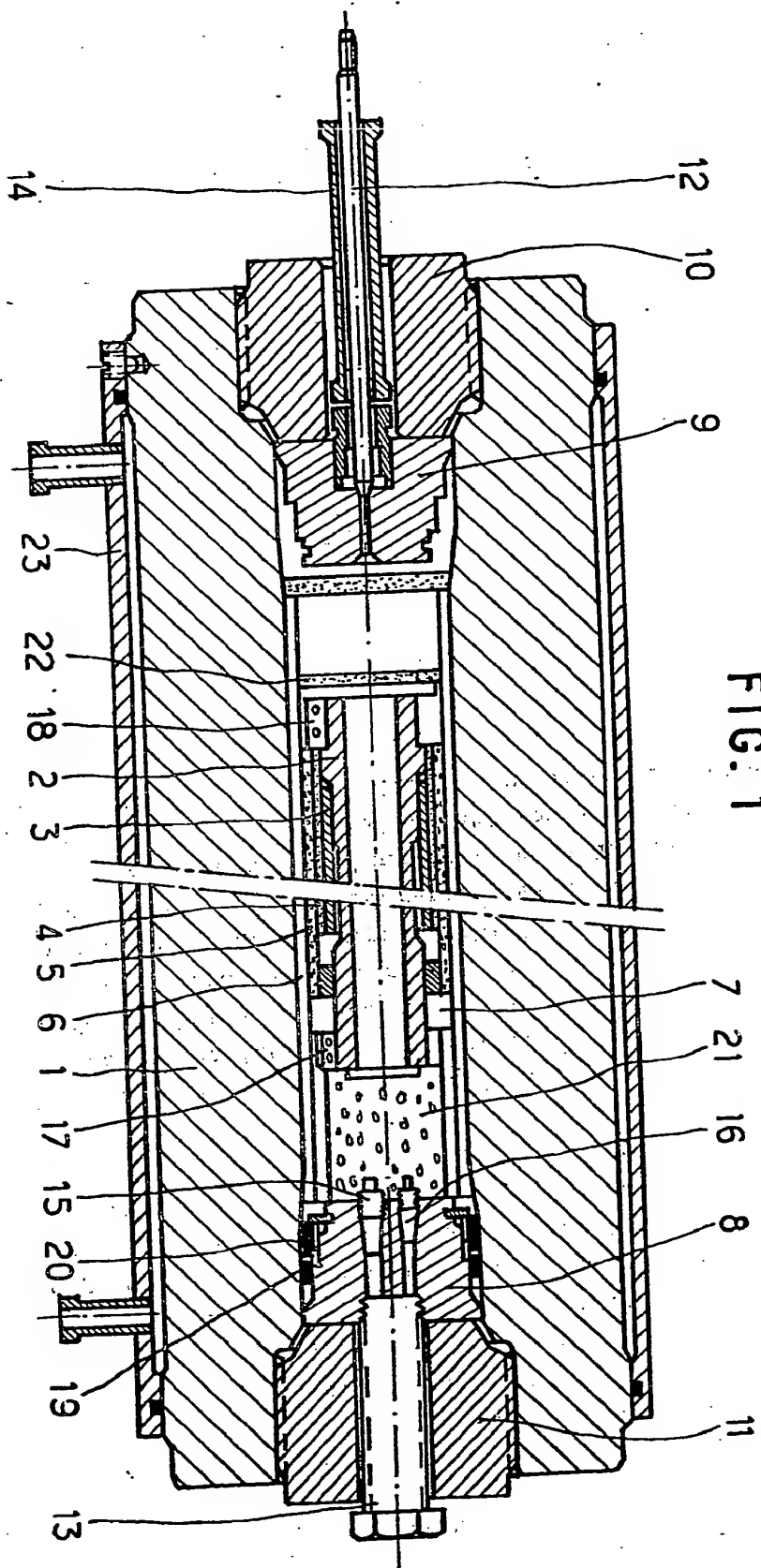
chapeau de fermeture 26. A titre d'exemple, on est parvenu à obtenir une

fusion du nickel avec une intensité de courant de 60 ampères et sous une pression de 1 850 bars.

Enfin, on a représenté à la figure 4 un exemple de réalisation des filets de vis et d'écrou des bouchons de fermeture, ledit filet d'écrou comportant un dégagement conique pour diminuer le contact au niveau des premiers filets et assurer en conséquence une meilleure répartition de la pression.

REVENDICATIONS

1. Autoclave de laboratoire pour la compression isostatique à chaud, du type comportant un corps cylindrique en acier dans lequel sont logés un corps de chauffe, des moyens d'isolation thermique et électrique, des moyens de mesurer la température, ledit corps cylindrique étant muni de moyens pour assurer la fermeture et l'étanchéité de l'ensemble, caractérisé en ce que le corps de chauffe est constitué par un cylindre creux en graphite, au centre duquel est placée une nacelle portant l'échantillon à traiter.
- 10 2. Autoclave selon la revendication 1, caractérisé en ce que le corps de chauffe est usiné sur au moins une partie de sa longueur de manière à diminuer l'intensité du courant nécessaire.
3. Autoclave selon la revendication 2, caractérisé en ce que la partie centrale du corps de chauffe est usinée superficiellement pour obtenir une configuration hélicoïdale.
- 15 4. Autoclave selon l'une quelconque des revendications 1 à 3, caractérisé en ce que l'échantillon à traiter est disposé dans une nacelle en graphite disposée au centre du corps de chauffe.
- 20



PL I-2

2439616

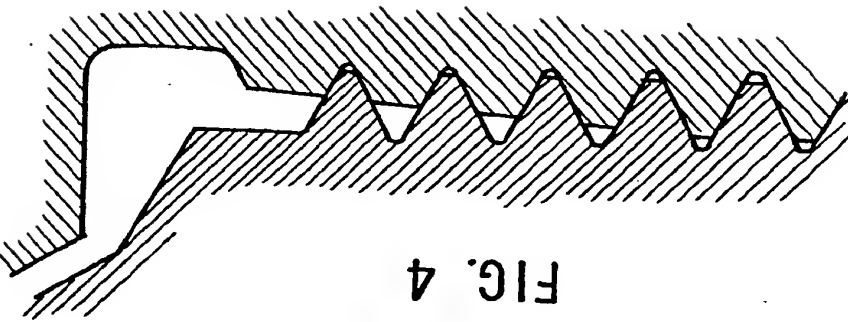


FIG. 4

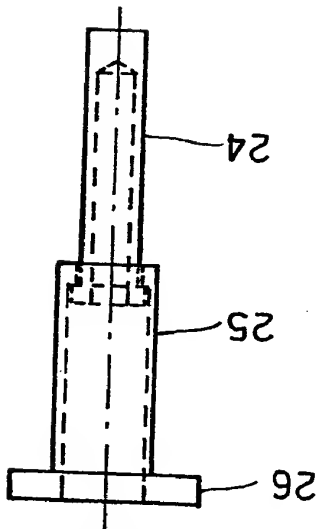


FIG. 3

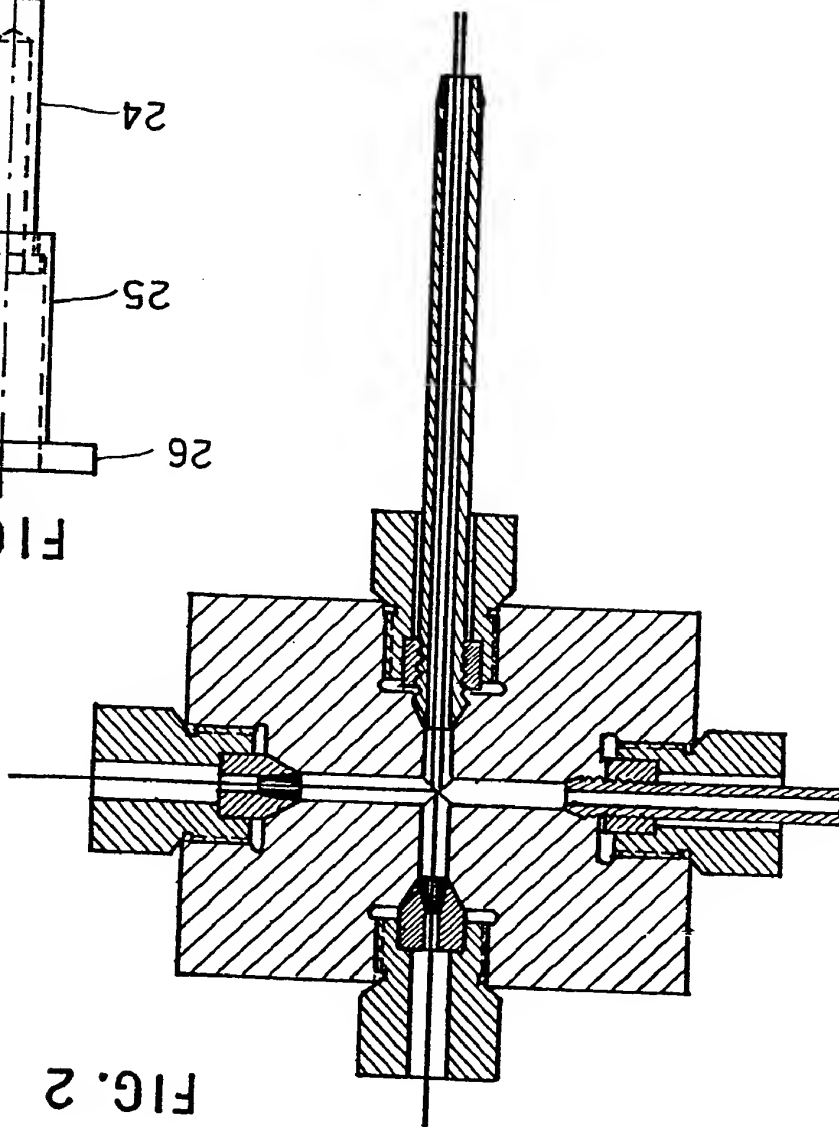


FIG. 2